

PAT-NO: JP02004256612A

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 2004256612 A

TITLE: RED LUMINESCENT MATERIAL AND ORGANIC  
ELECTROLUMINESCENT  
ELEMENT HAVING THE MATERIAL

PUBN-DATE: September 16, 2004

INVENTOR-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
KONDOU, TERUMASA	N/A
DAIMON, HIDEO	N/A
KAMATA, SHUNEI	N/A

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
HITACHI MAXELL LTD	N/A
NATIONAL INSTITUTE OF ADVANCED INDUSTRIAL & TECHNOLOGY	N/A

APPL-NO: JP2003047031

APPL-DATE: February 25, 2003

INT-CL (IPC): C09K011/06, C09B055/00 , H05B033/14 , C07F015/00 ,  
C07F015/04

ABSTRACT:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a red luminescent element  
material having  
improved durability to repeated employment.

SOLUTION: This red luminescent material for organic  
electroluminescent  
elements comprises a compound represented by the general formula (1)  
(R1 to R18  
are each independently H, or a substituent selected from the group  
consisting  
of a halogen atom, hydroxy, formyl, carboxy, cyano, nitro, amino,  
sulfonic  
group, an alkyl, an alkenyl, an alkoxy, a hydroxyalkyl, a

carboxyalkyl, an  
alkylcarbonyl, an alkoxycarbonyl, an alkylcarbonyloxy, an aromatic  
hydrocarbon  
group and an aromatic heterocyclic group; M is an n-valent metal ion;  
\*  
exhibits the possibility of the existence of an asymmetric carbon  
atom).

COPYRIGHT: (C) 2004, JPO&NCIPI

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-256612

(P2004-256612A)

(43) 公開日 平成16年9月16日(2004.9.16)

(51) Int. Cl.<sup>7</sup>

F 1

テーマコード (参考)

C09K 11/06

C09K 11/06 660

3K007

C09B 55/00

C09B 55/00

C

4H050

H05B 33/14

H05B 33/14

B

// C07F 15/00

C07F 15/00

B

C07F 15/04

C07F 15/00

E

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 12 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2003-47031 (P2003-47031)

(22) 出願日 平成15年2月25日 (2003.2.25)

(71) 出願人 000005810

日立マクセル株式会社

大阪府茨木市丑寅1丁目1番88号

(71) 出願人 301021533

独立行政法人産業技術総合研究所

東京都千代田区霞が関1-3-1

(74) 代理人 100079555

弁理士 梶山 信是

(74) 代理人 100079957

弁理士 山本 富士男

(72) 発明者 近藤 輝優

大阪府茨木市丑寅一丁目1番88号 日立

マクセル株式会社内

最終頁に続く

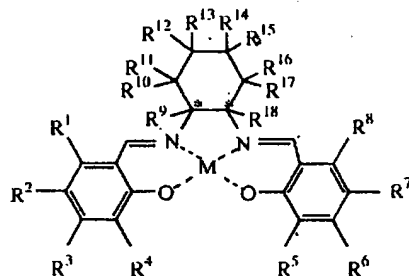
(54) 【発明の名称】 赤色発光材料及び該材料を有する有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) 【要約】

【課題】 繰り返し使用に対する改善された耐久性を有する赤色発光素子用化合物を提供する。

【解決手段】 下記の一般式(1)

【化1】



(1)

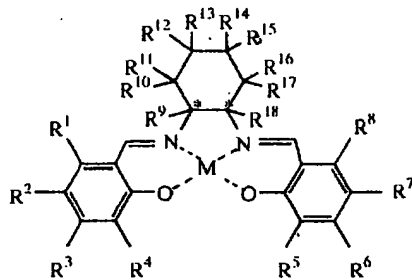
(式中、 $R^1 \sim R^{18}$  は、それぞれ独立して、水素原子、又はハロゲン原子、ヒドロキシル基、ホルミル基、カルボキシ基、シアノ基、ニトロ基、アミノ基、スルホン酸基、アルキル基、アルケニル基、アルコキシ基、ヒドロキシアルキル基、カルボキシアルキル基、アルキルカルボニル基、アルコキシカルボニル基、アルキルカルボニルオキシ基、芳香族炭化水素基及び芳香族複素環基からなる群から選択される置換基であり、Mはn価の

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

下記の一般式 (1)

## 【化 1】



(1)

(式中、 $R^1 \sim R^{18}$  は、それぞれ独立して、水素原子、又はハロゲン原子、ヒドロキシ基、ホルミル基、カルボキシ基、シアノ基、ニトロ基、アミノ基、スルホン酸基、アルキル基、アルケニル基、アルコキシ基、ヒドロキシアルキル基、カルボキシアルキル基、アルキルカルボニル基、アルコキシカルボニル基、アルキルカルボニルオキシ基、芳香族炭化水素基及び芳香族複素環基からなる群から選択される置換基であり、Mはn価の金属イオンを表し、\*は不斉炭素原子の存在可能性を示す。)で示される化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用赤色発光材料。

## 【請求項 2】

前記n価の金属イオンは、白金、金、銀、銅、亜鉛、鉄、鉛、水銀、ニッケル、パラジウム、ユーロピウム、イリジウム、ロジウム、アルミニウム、ベリリウム、コバルト、モリブデン、スズ、カルシウム、バリウム、マグネシウム、ガリウム、マンガン、イットリウム、ゲルマニウム及びカドミウムからなる群から選択されることを特徴とする請求項1に記載の赤色発光材料。

## 【請求項 3】

陽極と陰極との電極間に発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した有機エレクトロルミネッセンス素子において、赤色発光層が請求項1又は2記載の赤色発光材料を含有する層であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【請求項 4】

陽極と発光層との間に正孔注入層が形成されていることを特徴とする請求項3に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【請求項 5】

陰極と発光層との間に電子注入層が形成されていることを特徴とする請求項3又は4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の属する技術分野】

本発明は発光特性に優れた有機エレクトロルミネッセンス (有機EL素子) に関する。更に詳細には、本発明は耐久性が改善された赤色発光素子を有する有機EL素子に関する。

## 【0002】

## 【従来の技術】

有機化合物を発光素子として使用する有機EL素子は自発光型の平面型大面積フルカラー表示素子としてその用途が有望視されている。一般的に、有機EL素子は、一対の対向電極の間に発光層を挟装した構造を有する。有機EL素子は、両対向電極間に電界が印加されると、陰極側から電子が注入され、陽極側から正孔が注入され、この注入電子が発光層において正孔と再結合し、エネルギー準位が伝導帯から価電子帯に戻る際にエネルギーを光として放出することにより発光する。

## 【0003】

有機EL素子は無機EL素子に比べて、印加電圧を大幅に低下させることができるので、各種材料を用いたものが開発されている。例えば発光材料として、C. W. Tangらによる積層型素子による低電圧駆動有機EL素子が検討されている（例えば、非特許文献1参照アプライド フィジックス レターズ (Applied Physics Letters)、51巻、913頁、1987年）。

## 【0004】

有機EL素子をフルカラー表示素子にする場合、赤色、青色、緑色の3原色の発光が必要である。緑色発光素子については、前記の論文においてトリス(8-キノリノール)アルミニウムを用いた素子などがあり、有機EL素子として必要な要求特性を満たしている。 10

## 【0005】

また、青色発光素子については、ビニルピリジン系化合物を用いた素子（例えば、特許文献1参照）やスチレン誘導体を用いた素子（例えば、特許文献2参照）、イミダゾール金属錯体を用いた素子（例えば、特許文献3参照）などがあり、これらも有機EL素子として必要な要求特性を満たしている。

## 【0006】

また、赤色発光素子については、ポルフィリン誘導体を用いた素子（例えば、特許文献4参照）やメチン化合物（例えば、特許文献5参照）などが報告されている。しかし、これらの赤色発光素子用化合物は繰り返し使用に対する耐久性の点で問題のあることが発見された。 20

## 【0007】

## 【特許文献1】

特開平13-131150号公報

## 【特許文献2】

特開平12-239318号公報

## 【特許文献3】

特開平10-265478号公報

## 【特許文献4】

特開平10-36828号公報

## 【特許文献5】

特開平11-335661号公報

## 【非特許文献1】

アプライド フィジックス レターズ (Applied Physics Letters)、51巻、913頁、1987年

## 【0008】

## 【発明が解決しようとする課題】

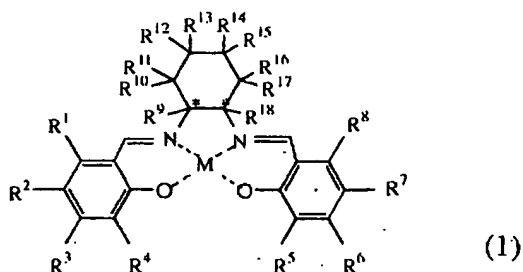
従って、本発明の目的は、繰り返し使用に対する改善された耐久性を有する赤色発光素子用化合物を提供することである。

## 【0009】

## 【課題を解決するための手段】

前記課題は、下記の一般式(1) 40

## 【化2】



(式中、 $R^1 \sim R^{18}$  は、それぞれ独立に、水素原子、又はハロゲン原子、ヒドロキシル基、ホルミル基、カルボキシル基、シアノ基、ニトロ基、アミノ基、スルホン酸基、アルキル基、アルケニル基、アルコキシ基、ヒドロキシアルキル基、カルボキシルアルキル基、アルキルカルボニル基、アルコキシカルボニル基、アルキルカルボニルオキシ基、芳香族炭化水素基及び芳香族複素環基からなる群から選択される置換基であり、Mはn価の金属イオンを表し、\*は不斉炭素原子の存在可能性を示す。)で示される化合物を有機EL素子用赤色発光体として使用することにより解決される。

#### 【0010】

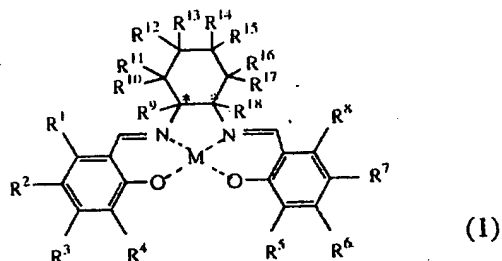
前記一般式(1)で示される化合物において、分子中に不斉炭素原子が存在する場合、形成される各光学異性体及びラセミ体も本発明の化合物の範囲に含まれる。

#### 【0011】

#### 【発明の実施の形態】

一对の電極間に発光層を含む少なくとも1層の有機化合物薄膜を形成した有機EL素子において、赤色発光層が下記の一般式(1)

#### 【化3】



(式中、 $R^1 \sim R^{18}$ 、M及び\*は前記に定義した通りのものである。)で示される有機金属錯体化合物からなる赤色発光素子材料を含有する。本発明の有機EL素子は、発光層と陽極との間に正孔注入層を形成し、また、発光層と陰極との間に電子注入層を形成する。

#### 【0012】

本発明における一般式(1)で示される有機金属錯体化合物の $R^1 \sim R^{18}$ は、それぞれ独立して水素原子；塩素、臭素、ヨウ素又はフッ素などのハロゲン原子；ヒドロキシル基；ホルミル基；カルボキシル基；シアノ基；ニトロ基；アミノ基；スルホン酸基；あるいはメチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、tert-ブチル基、sec-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基等の炭素数1~20の直鎖または分岐のアルキル基；ビニル基、プロペニル基、ベテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基等の1~20の直鎖または分岐のアルケニル基；メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、イソプロポキシ基、n-ブトキシ基、tert-ブトキシ基、エトキシカルボニルプロポキシ基、sec-ブトキシ基、n-ペンチルオキシ基、n-ヘキシルオキシ基、n-ヘプチルオキシ基等の置換されていてもよい炭素数1~20の直鎖または分岐のアルコキシ基；ヒドロキシメチル基、ヒドロキシエチル基等の炭素数1~20のヒドロキシアルキル基；ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環、チオフェン環、フラン環、

ピロール環、ピラゾール環、ピリジン環、ピラン環等の炭素数6～12の芳香環または複素環；カルボキシルメチル基等のカルボキシアルキル基；メトキシカルボニル基、トリフルオロメトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、*n*-プロポキシカルボニル基、イソプロポキシカルボニル基、*n*-ブトキシカルボニル基、*tert*-ブトキシカルボニル基、*sec*-ブトキシカルボニル基、*n*-ペンチルオキシカルボニル基、*n*-ヘキシルオキシカルボニル基等の置換されていてもよい炭素数2～21の直鎖または分岐のアルコキシカルボニル基；メチルカルボニルオキシ基、エチルカルボニルオキシ基、*n*-プロピルカルボニルオキシ基、イソプロピルカルボニルオキシ基、*n*-ブチルカルボニルオキシ基、*sec*-ブチルカルボニルオキシ基、*tert*-ブチルカルボニルオキシ基、*n*-ペンチルカルボニルオキシ基等の置換されていてもよい炭素数2～21の直鎖または分岐のアルキルカルボニルオキシ基；メトキシカルボニルメチル基、メトキシカルボニルエチル基、エトキシカルボニルメチル基、エトキシカルボニルエチル基、*n*-プロポキシカルボニルエチル基、*n*-プロポキシカルボニルプロピル基、イソプロポキシカルボニルメチル基、イソプロポキシカルボニルエチル基等の炭素数3～22の直鎖または分岐のアルコキシカルボニルアルキル基が挙げられる。また、 $R^1 \sim R^8$ のうち隣接する置換基同士が結合して環状基を形成してもよい。例えば、 $R^1 \sim R^8$ のうち隣接する置換基同士が結合してシクロアルキル環（例えば、シクロペンタン環又はシクロヘキサン環など）、アリール環（例えば、ベンゼン環、ナフタレン環、アントラセン環など）又は複素環（ピリジン環、ピリミジン環など）などの環状基を形成することができる。これらの環状基は置換されていても良いし、又は置換されていなくても良い。

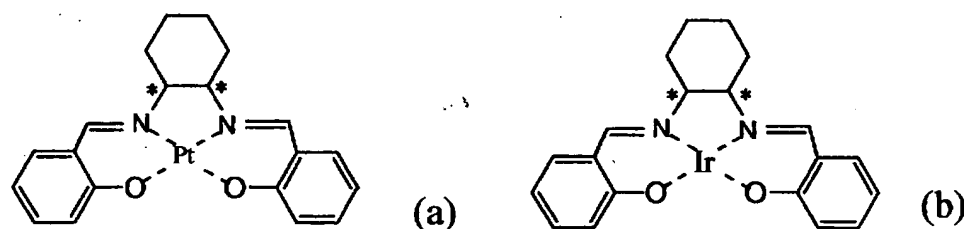
#### 【0013】

本発明における一般式(1)で示される有機金属錯体化合物におけるMは*n*価の金属イオンであり、白金、金、銀、銅、亜鉛、鉄、鉛、水銀、ニッケル、パラジウム、ユーロピウム、イリジウム、ロジウム、アルミニウム、ベリリウム、コバルト、モリブデン、スズ、カルシウム、バリウム、マグネシウム、ガリウム、マンガン、イットリウム、ゲルマニウム及びカドミウムからなる群から選択される。

#### 【0014】

前記一般式(1)で示される化合物において、分子中に不斉炭素原子が存在する場合、形成される各光学異性体及びラセミ体も本発明の化合物の範囲に含まれる。例えば、下記の化学構造式

#### 【化4】

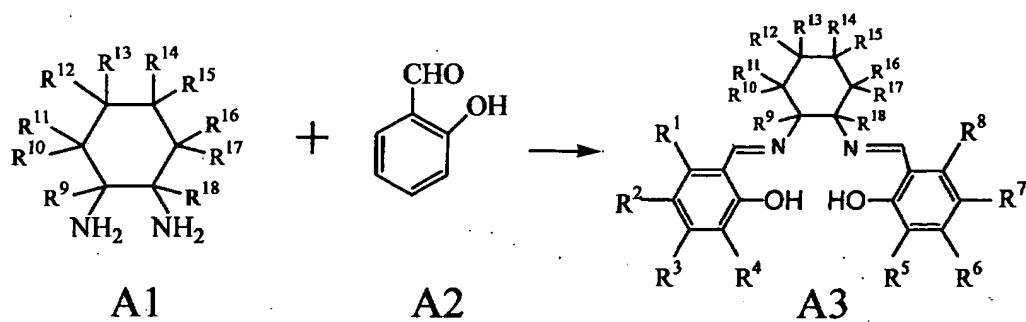


の時に\*印の位置に不斉炭素が存在することとなるので、光学異性体及びラセミ体が生じる可能性がある。

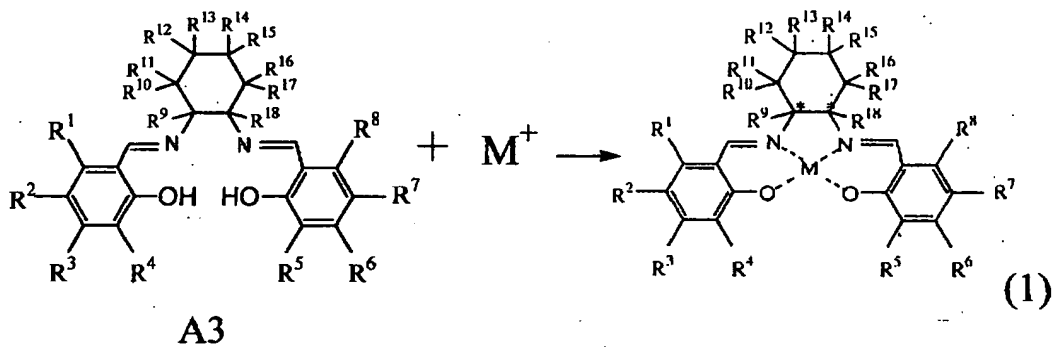
#### 【0015】

前記一般式(1)で示される化合物は、例えば、下記の方法により製造することができる。下記的一般式(A1)で示されるシクロヘキサジアン誘導体をメタノールなどの溶剤に溶解させ、この溶液に、窒素ガスをパージしながら下記的一般式(A2)で示されるサリチルアルデヒドを滴下して反応させると、一般式(A3)で示されるN, N'-ビス(サリチリデン)-(R, R)-シクロヘキサジアンが得られる。次いで、A3の化合物にMで示される錯体形成用金属塩化合物を反応させることにより一般式(1)で示される化合物が得られる。

#### 【化5】



10



20

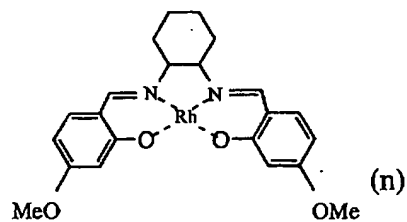
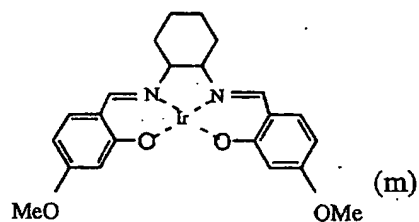
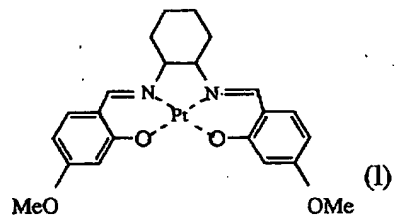
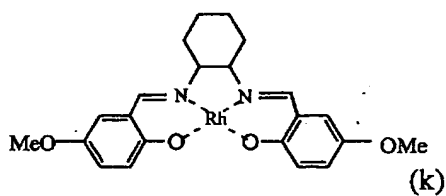
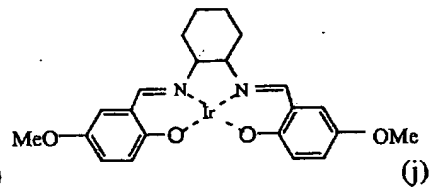
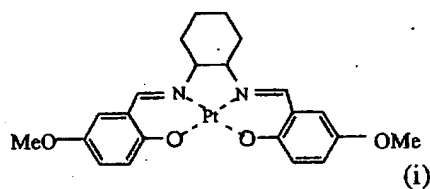
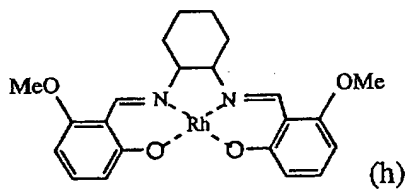
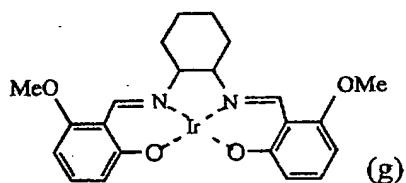
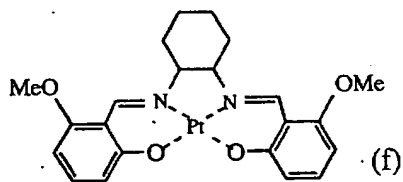
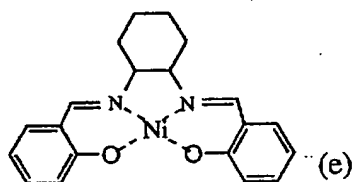
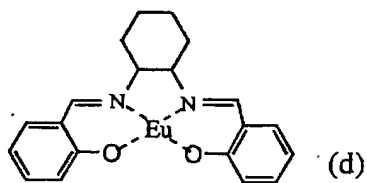
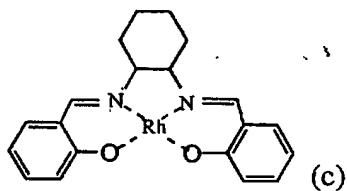
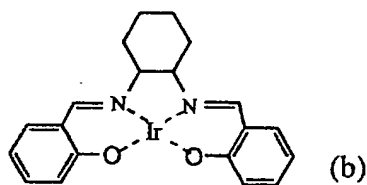
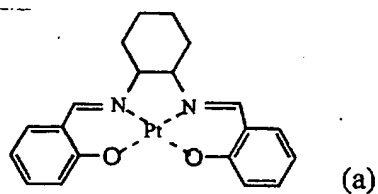
(式中、 $R^1 \sim R^{18}$ 、 $M$ 及び\*は前記に定義した通りのものである。)

【0016】

本発明の一般式(1)で示される化合物としては具体的には以下の構造のものが挙げられる。

【化6】





【0017】

有機EL素子は、陽極と陰極との間に少なくとも1層の有機薄膜を有する素子である。1層型の場合、陽極と陰極との間に発光層を有する。発光層は発光材料を含有し、更に、陽

10

20

30

40

50

極から注入した正孔又は陰極から注入した電子を発光材料まで輸送するための正孔注入材料又は電子注入材料も有する。発光層の発光材料として前記一般式(1)の化合物を使用し、耐久性に優れ、赤色領域において発光輝度が高い有機EL素子を得ることができる。一般式(1)の化合物は発光層内において、10重量%~30重量%の範囲内の配合量で配合されている。

#### 【0018】

発光層内には前記一般式(1)の化合物の他に、必要に応じて、ドーピング材料、正孔注入材料及び/又は電子注入材料などを配合することができる。このような材料自体は当業者に公知である。本発明の有機EL素子においてもこれら公知慣用の材料を適宜選択して使用することができる。

10

#### 【0019】

本発明の有機EL素子では、陽極用の導電性材料として4eVよりも大きな仕事関数を有する材料を使用し、陰極用の導電性材料として4eVより小さな仕事関数を有する材料を使用する事が好ましい。4eVよりも大きな仕事関数を有する材料は例えば、C、Al、Fe、Co、Ni、Pt、Ag、Pd、W、V又はこれらの合金類、酸化金属類(例えば、酸化錫、酸化インジウムなど)又は有機導電性樹脂(例えば、ポリチオフェン、ポリピロールなど)などである。4eVより小さな仕事関数を有する材料は例えば、Mg、Ca、Ti、Y、Sn、Pb、Li、Mn、Ru、又はこれらの合金類などである。その他の材料類も適宜使用できる。

#### 【0020】

本発明の有機EL素子では、高効率発光を達成するために、一方が素子の発光波長領域において透明である。また、基板も透明であることが好ましい。透明電極は前記導電性材料を使用し、蒸着又はスパッタリングなどの公知のベーパーデポジション法により形成することができる。発光面の電極の光透過率は10%以上であることが好ましい。これ未満では不透明と変わりなく非実用的である。

20

#### 【0021】

本発明の有機EL素子における基板は、透明であり、しかも十分な機械的強度を有し、かつ、耐熱性を有するものであることが好ましい。例えば、ガラス基板や合成樹脂基板などである。合成樹脂基板は有機EL素子に柔軟性も付与するので好ましい材料である。このような合成樹脂基板は例えば、ポリエチレン樹脂、ナイロン樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリプロピレン樹脂などである。

30

#### 【0022】

本発明の有機EL素子における発光層は真空蒸着、スパッタリングなどの乾式成膜の他、スピンコート、グラビア印刷、刷毛塗り、どぶ漬けなどの湿式成膜法のいずれかにより形成することができる。発光層の膜厚は一般的に、1nm~100μmの範囲内であることが好ましい。膜厚が1nm未満では均一な厚さに成膜することが困難であるばかりか、ピンホールなどが生じて、電界を印加しても発光輝度が不十分となる。一方、膜厚が100μm超では、所定の光出力を得るのに大きな印加電圧が必要になり、非効率となる。湿式成膜法の場合、一般式(1)の化合物を溶解させるために、適当な溶剤を使用することができる。このような溶剤類は当業者に公知である。

40

#### 【0023】

本発明の一般式(1)の化合物は、従来から使用されている赤色発光材料と組み合わせて使用することもできる。また、キノリン金属錯体、オキサジアゾール、トリアゾール、オキサゾールなどの公知慣用のホスト物質を併用することもできる。

#### 【0024】

本発明の有機EL素子は所望により、その表面に保護層を設けたり又はシリコンオイルなどを封入して素子全体を保護することができる。これにより、温度や湿度などの雰囲気変化に対して、素子の耐久性を高めることができる。

#### 【0025】

#### 【実施例】

50

以下、実施例により本発明の一般式(1)で示される化合物の生成とこの化合物を使用した有機EL素子を具体的に例証する。

#### 【0026】

##### 実施例1

前記一般式(A1)に対応する化合物である(R,R)-シクロヘキサンジアミン(2.85g、25ミリモル)を10mlのメタノールに溶かした。窒素ガスをパージしながら、この溶液に対して10mlのメタノールに溶かしたサリチルアルデヒド(6.1g、50ミリモル)(前記一般式(A2)に対応する化合物)をゆっくりと滴下した。この混合液を水浴60℃に浸し1時間攪拌した。濾過して蒸留水を加えると、4.66gの前記一般式(A3)に対応する化合物であるN,N'-ビス(サリチリデン)-(R,R)-シクロヘキサンジアミンが得られた。MS分析により、 $M^+ = 322$ を確認した。

100℃に暖めた60mlのN,N-ジメチルホルムアミドに対して、前記のN,N'-ビス(サリチリデン)-(R,R)-シクロヘキサンジアミン(1.93g、6ミリモル)を加え溶解した。この溶液に対して酢酸ナトリウム(984mg、12ミリモル)を加え攪拌した。つぎにこの溶液に対して、テトラクロロ白金(II)酸カリウム(2.49g、6ミリモル)を加えた。この溶液を100℃で24時間攪拌した。室温まで冷却した後、濾過した。N,N-ジメチルホルムアミド(60ml)と蒸留水(100ml)で洗浄した。濾過した固形物を48時間ソックスレイ抽出した。抽出した溶液を濾過した後、105℃で24時間減圧乾燥すると、前記化6の構造式(a)で示される化合物、N,N'-ビス(サリチリデン)-(R,R)-シクロヘキサンジアミナート プラチナが101mg得られた。FAB-MS分析により、 $M^+ + 1 = 515$ を確認した。

#### 【0027】

##### 実施例2

前記一般式(A1)に対応する化合物である(R,R)-シクロヘキサンジアミン(5.7g、50ミリモル)を20mlのエタノールに溶かした。窒素ガスをパージしながら、この溶液に対して20mlのエタノールに溶かしたサリチルアルデヒド(12.2g、100ミリモル)をゆっくりと滴下した。この混合液を水浴60℃に浸し1時間攪拌した。この溶液に塩化ニッケル(17.8g、75ミリモル)を加え、3時間還流した。室温まで冷却後、700mlの塩化メチレンを加えた。1000mlの飽和塩化ナトリウム水溶液で洗浄し、硫酸マグネシウムで1晩乾燥した。この溶液を濾過した後、エバポレーターで濃縮すると、前記構造式(e)で示される化合物が10.16g得られた。FAB-MS分析により、 $M^+ + 1 = 379$ を確認した。

#### 【0028】

##### 実施例3

100℃に暖めた30mlのN,N-ジメチルホルムアミドに対して、N,N'-ビス(サリチリデン)-(R,R)-シクロヘキサンジアミン(965mg、3ミリモル)を加え溶解した。この溶液に対して酢酸ナトリウム(492mg、6ミリモル)を加え攪拌した。つぎにこの溶液に対して、塩化イリジウム(IV)(1.00g、3ミリモル)を加えた。この溶液を100℃で24時間攪拌した。室温まで冷却した後、濾過した。N,N-ジメチルホルムアミド(30ml)と蒸留水(50ml)で洗浄した。濾過した固形物を48時間ソックスレイ抽出した。抽出した溶液を濾過した後、105℃で24時間減圧乾燥すると、前記構造式(b)で示される化合物が60mg得られた。FAB-MS分析により、 $M^+ + 1 = 513$ を確認した。

#### 【0029】

##### 実施例4

100℃に暖めた30mlのN,N-ジメチルホルムアミドに対して、N,N'-ビス(サリチリデン)-(R,R)-シクロヘキサンジアミン(965mg、3ミリモル)を加え溶解した。この溶液に対して酢酸ナトリウム(492mg、6ミリモル)を加え攪拌した。次いで、この溶液に対して、塩化ロジウム(III)三水合物(789mg、3ミリモル)を加えた。この溶液を100℃で24時間攪拌した。室温まで冷却した後、濾過し

た。N, N-ジメチルホルムアミド (30 ml) と蒸留水 (50 ml) で洗浄した。濾過した固形物を48時間ソックスレイ抽出した。抽出した溶液を濾過した後、105℃で24時間減圧乾燥すると、前記構造式(c)で示される化合物が43mg得られた。FAB-MS分析により、 $M^+ + 1 = 424$ を確認した。

#### 【0030】

##### 実施例5

実施例1で合成した、構造式(a)で示される化合物をクロロホルムに溶解して $3.88 \times 10^{-5}$  Mの濃度とした。吸収スペクトルの測定を行ったところ、 $\lambda_{max}$ は345 nm ( $\log \epsilon = 4.22$ )であった。

#### 【0031】

10

##### 実施例6

実施例1で合成した、構造式(a)で示される化合物を60℃、90% RH下で1週間保持した後、クロロホルムに溶解して $3.88 \times 10^{-5}$  Mの濃度とした。実施例5と同様に吸収スペクトルの測定を行ったところ、 $\lambda_{max}$ は345 nm ( $\log \epsilon = 4.25$ )と変化がなかった。

#### 【0032】

##### 実施例7

実施例1で合成した、構造式(a)で示される化合物をクロロホルムに溶解して $3.88 \times 10^{-5}$  Mの濃度とした。蛍光スペクトルの測定を行ったところ、500から700 nmに発光を示し $\lambda_{max}$ は546および585 nmであった。

20

#### 【0033】

##### 実施例8

実施例1で合成した、構造式(a)で示される化合物を60℃、90% RH下で1週間保持した後、クロロホルムに溶解して $3.88 \times 10^{-5}$  Mの濃度とした。実施例7と同様に蛍光スペクトルの測定を行ったところ、500から700 nmに発光を示し $\lambda_{max}$ は544および585 nmと変化がなかった。

#### 【0034】

##### 実施例9～22

洗浄したITO電極付きガラス基板上に、N, N-(4-メチルフェニル)-N, N-(4-n-ブチルフェニル)-フェナントレン-9, 10-ジアミンを真空蒸着して、膜厚40 nmの正孔注入層を形成した。次いで、実施例1で合成した、構造式(a)で示される化合物を真空蒸着して膜厚60 nmの赤色発光層を形成した。この発光層上にPt電極を膜厚100 nmで形成し、有機EL素子を作製した。真空蒸着は $10^{-5}$  Torr、室温条件で実施した。

30

同様に、構造式(b)～(n)で示される化合物を赤色発光材料として使用した有機EL素子を作製した。このようにして得られた各有機EL素子を直流電圧5 Vで駆動し、赤色発光輝度を測定した。

また、前記のようにして作製された各有機EL素子を60℃、90% RHの雰囲気下で5 mA/cm<sup>2</sup>で連続発光させ、発光輝度が初期値の50%にまで低下するまでの時間を測定した。測定結果を下記の表1に要約して示す。

40

#### 【0035】

##### 比較例1

赤色発光材料としてフタロシアニン塩化アルミニウムを使用したこと以外は実施例9と同様にして有機EL素子を作製し、この素子を直流電圧5 Vで駆動し、赤色発光輝度を測定した。また、60℃、90% RHの雰囲気下で5 mA/cm<sup>2</sup>で連続発光させ、発光輝度が初期値の50%にまで低下するまでの時間を測定した。測定結果を下記の表1に要約して示す。

#### 【0036】

##### 【表1】

	化 合 物	発 光 輝 度 ( $\text{cd}/\text{cm}^2$ )	耐 久 性 (時間)
実施例9	(a)	350	>2000
実施例10	(b)	310	<1800
実施例11	(c)	220	>2000
実施例12	(d)	250	<1300
実施例13	(e)	110	<400
実施例14	(f)	330	>2000
実施例15	(g)	300	<1600
実施例16	(h)	320	>2000
実施例17	(i)	320	>2000
実施例18	(j)	290	<1500
実施例19	(k)	250	>2000
実施例20	(l)	330	<1500
実施例21	(m)	300	<1600
実施例22	(n)	310	<1800
比較例1	フクロシアニオン塩化アルミニウム	120	<200

## 【0037】

前記表1に示された結果から明らかなように、本発明の一般式(1)で示される化合物は比較例の化合物に比べて、発光輝度の点で優れた性能を示すばかりか、高温・高湿度の環境下でも長時間の連続駆動が可能である。

## 【0038】

## 【発明の効果】

以上説明したように、本発明によれば、従来の赤色発光材料に比べて、高い発光輝度を示すばかりか、高温・高湿度の環境下でも長時間の連続駆動が可能な高耐久性を有する赤色発光材料が得られる。

フロントページの続き

(51)Int. Cl.<sup>7</sup>

F I

テーマコード (参考)

C 0 7 F 15/00

F

C 0 7 F 15/04

(72)発明者 大門 英夫

大阪府茨木市丑寅一丁目1番88号 日立マクセル株式会社内

(72)発明者 鎌田 俊英

茨城県つくば市東1-1-1 独立行政法人産業技術総合研究所つくばセンター内

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB04 AB11 AB13 AB14 DB03

4H050 AA03 AB91 WB13 WB21

【要約の続き】

金属イオンを表し、\*は不斉炭素原子の存在可能性を示す。)で示される化合物からなる有機エレクトロルミネッセンス素子用赤色発光材料。

【選択図】 なし